

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 10 月 3 日 (03.10.2002)

PCT

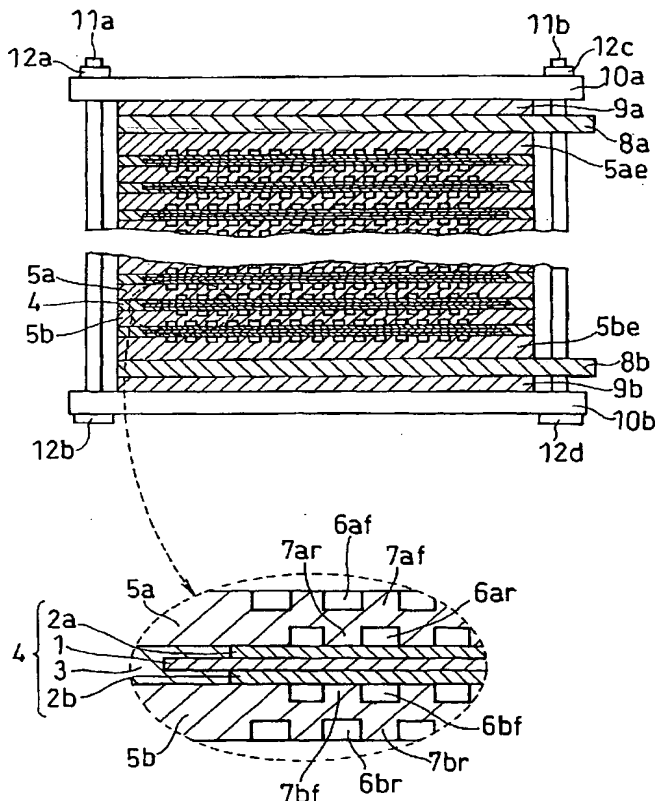
(10) 国際公開番号
WO 02/078108 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/24 168-0063 東京都 杉並区 和泉 1-53-14 静山荘 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/02869
- (22) 国際出願日: 2002 年 3 月 25 日 (25.03.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2001-86987 2001 年 3 月 26 日 (26.03.2001) JP
特願2001-106731 2001 年 4 月 5 日 (05.04.2001) JP
- (71) 出願人 (米国についてのみ): 菅生 昌世 (SUGOU, Masayo) (発明者(死亡)の相続人) [JP/JP]; 〒
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 長谷 伸啓 (HASE, Nobuhiro) [JP/JP]; 〒572-0055 大阪府 寝屋川市 御幸東町 3-14 松風寮 545 Osaka (JP). 日下部 弘樹 (KUSAKABE, Hiroki) [JP/JP]; 〒590-0113 大阪府 堺市 晴美台 1-20-5 Osaka (JP).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府 門真市 大字門真 1006 番地 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 山崎 達人 (YAMAZAKI, Tatsuto) (死亡).

[続葉有]

(54) Title: HIGH-POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 高分子電解質型燃料電池



(57) Abstract: A fuel cell comprising a fuel stack including conductive separator plates and an MEA (electrolyte film-electrode coupling) inserted between the separator plates and particularly an improvement of the separator plate. Conventionally, both front and rear main faces of each separator plate has a fuel gas circulation groove and an oxidizer gas circulation groove in the matching positions of both the gas circulation grooves. Therefore, the miniaturization of the fuel cell has caused the problem that the groove bottom between by both the gas circulation grooves of each separator plate needs to be thin and gas leakage by break of the thin part and difficulty in formation of the thin part may be caused. This invention makes it possible to avoid a thin part of a separator plate by matching the position of the gas circulation groove on one main face with that of a rib on the other main face of each separator plate, thereby solving the problem.

[続葉有]

WO 02/078108 A1



小原 英夫 (OHARA,Hideo) [JP/JP]; 〒576-0016 大阪府 交野市 星田 7-6 7-4 Osaka (JP). 竹口 伸介 (TAKEGUCHI,Shinsuke) [JP/JP]; 〒571-0074 大阪府 門真市 宮前町 1 6-1 松和寮 2 2 6 Osaka (JP). 山本 義明 (YAMAMOTO,Yoshiaki) [JP/JP]; 〒576-0022 大阪府 交野市 藤が尾 6-4-1 9 Osaka (JP).

(74) 代理人: 石井 和郎, 外 (ISHII,Kazuo et al.); 〒541-0041 大阪府 大阪市 中央区北浜 2 丁目 3 番 6 号 北浜山本ビル Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

添付公開書類:

— 国際調査報告書
— 補正書・説明書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

本発明は、複数の導電性セパレータ板およびそのセパレータ板の間に挿入された M E A (電解質膜-電極接合体) を含む電池スタックを具備する燃料電池に関するもので、特にセパレータ板の改良に関する。従来は、各セパレータ板の表裏両主面に、それぞれ燃料ガス流通溝と酸化剤ガス流通溝とが、両ガス流通溝同士が対応する位置に形成されていた。そのため、燃料電池を小型化しようとする、各セパレータ板の、両ガス流通溝に挟まれた溝底部が薄肉化し、その結果、その薄肉部の破損によるガス漏洩、薄肉部の成形のしにくさ等の問題があった。本発明は、各セパレータ板の、一方の主面上のガス流通溝と他方の主面上のリブとを位置的に対応させることにより、セパレータ板の薄肉部を極力避けることを可能にし、それにより、上記問題を解決した。

明 細 書

高分子電解質型燃料電池

技術分野

本発明は、高分子電解質型燃料電池に関するもので、特にその構成要素である導電性セパレータ板の改良に関する。

背景技術

高分子電解質膜型燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと、空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを、電気化学的に反応させることにより、電力と熱とを同時に発生させ、この電力を取り出すことを基本原理としている。この燃料電池は、基本的には水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜およびその両面に形成された一对の電極、すなわちアノードとカソードからなる。電極は、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒層、およびこの触媒層の外面に形成された、通気性と電子導電性を併せ持つガス拡散層で構成される。

供給する燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、2種類のガスが互いに混合したりしないように、電極の周囲には、高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。このシール材やガスケットは、電極および高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられる。これをMEA（電解質－電極接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣り合うMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性のセパレータ板が配置される。セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給するとともに、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路が形成される。ガス

流路は、セパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータ板の表裏両主面に複数の溝を設け、それをガス流通溝とする方式が一般的である。なお、同一主面上で隣り合う溝の間の土手の形状を有するものをリップという。このようなセパレータ板の一对とそれに挟まれたMEAとで一つの電池、すなわちセルが構成される。

セパレータ板の表裏両主面の一方の主面のガス流通溝に燃料ガスを供給するとともに余剰ガス等を排出し、他方の主面のガス流通溝に酸化剤ガスを供給するとともに同じく余剰ガス等を排出するためには、セパレータ板に、貫通孔を2つ設け、ガス流通溝の出入り口をそれぞれこれらの貫通孔まで通し、一方の貫通孔から直接反応ガスを各ガス流通溝に分岐しながら供給し、他方の貫通孔から各ガスを排出するのが一般的な方法である。この各ガス流通溝へ反応ガスを供給し、また各ガス流通溝から余剰ガス等を排出するための貫通孔をマニホールド孔と呼ぶ。このような、ガス供給・排出方法を内部マニホールド方式という。

この内部マニホールド方式以外に、外部マニホールド方式と呼ばれる方法がある。外部マニホールド方式とは、反応ガスを供給するための配管を使用するセパレータ板の枚数に分岐し、その分岐先を、マニホールドと呼ばれる配管治具を用いて、直接セパレータ板の溝につなぎ込むように構成する方式である。

さらに、燃料電池は、運転中に発熱するので、通常は電池を冷却媒体で冷却する。通常、1～3セル毎に、冷却媒体を流す冷却部が設けられる。その場合、一方の主面に反応ガス流通溝を有し、他方の主面に冷却媒体流路を有するセパレータ板2枚を、その他方の主面同士、すなわち冷却媒体流路を有する面同士が接するように組み合わせて、冷却部とする場合が多い。

これらのMEAとセパレータ板および必要に応じて冷却部を交互に重

ねていき、10～200セルを積層する。その積層体を電池スタックという。この電池スタックを、集電板と絶縁板を介して端板で挟み、電池スタックに圧力をかけるように両端板を締結ボルトで締め付けて固定されたものが、一般的なセル積層方式の燃料電池の構造である。

このような燃料電池において、従来技術では（例えば特開2000-133291）、各セパレータ板において、その表裏両主面のうちの一方の主面のガス流通溝と他方の主面のガス流路とを、すなわち一方の主面のリブと他方の主面のリブとを、互いに対応する位置に形成するのが常識となっていた。そして、電池スタックの一端から他端まで、すべてのセパレータ板のリブ部分が単純にアラインし、また従って、セパレータ板のすべてのガス流通溝部分が単純にアラインするようにセパレータ板を積層し、電池スタックを固定するための締結力をそのリブを通して伝達する構造とすることが常識となっていた。

しかしながら、このような従来の燃料電池の場合は、各セパレータ板の表裏両主面上の両ガス流通溝で挟まれた流通溝底部がセパレータ板の最薄肉部となる。その結果、電池スタック製造時の締結ボルトによる圧力、あるいは製造後の燃料電池使用時に燃料電池に加わる圧力などにより、溝底部に亀裂や破損が発生し、その部分でガスリークが生じる可能性が高かった。また、逆にいえば、近年、燃料電池の薄型化の要請が強いが、従来の、溝底部に最薄肉部を有するセパレータ板の単純な積層という方法では、溝底部の強度の限界により、薄型化の限界があった。

さらに、低コスト化のために、セパレータ板を型を用いた圧縮成形や射出成形で製造する場合、セパレータ用の材料が、型の中の上記薄肉部対応部分へは流れ込みにくい。そのため製造が困難であるという問題もあった。

発明の開示

本発明は、導電性セパレータ板を改良して、その機械的強度を高めることにより、ガスリークの発生を抑制することを目的とする。

本発明の高分子電解質型燃料電池は、複数の導電性セパレータ板および前記導電性セパレータ板の間に挿入されたMEAを含む電池スタックを具備し、そのMEAが水素イオン伝導性高分子電解質膜、並びに前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソードを具備し、前記各導電性セパレータ板が、一方の主面に前記アノードに燃料ガスを供給・排出する複数の並行するガス流通溝を有し、他方の主面に前記カソードに酸化剤ガスを供給・排出する複数の並行するガス流通溝を有する高分子電解質型燃料電池であって、前記各導電性セパレータ板の両ガス流通溝は、一方の主面のガス流通溝が他方の主面のガス流通溝間のリブに対応するように配されている。

前記MEAのアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じMEAのカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝とが対応する位置にあることが好ましい。この溝－MEA－溝対応の場合、実質的にすべての前記導電性セパレータ板が同一形状を有し、隣り合う導電性セパレータ板が、交互に、各導電性セパレータ板の主面上で180度回転して配されていることが好ましい。

前記MEAのアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じMEAのカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝間のリブとが対応する位置にあることが、電池スタックの製造のしやすさを維持するという観点から好ましい。この溝－MEA－リブ対応の場合、実質的にすべての前記導電性セパレータ板が同一形状を有し、隣り合う導電性セパレータ板が、各導電性セパレータ板の主面上で同一方向に配されていることが好ましい。また、この溝－MEA－リブ対応の場合、前記

各導電性セパレータ板の、前記一方の主面の前記ガス流通溝間のリブの幅、および前記他方の主面の前記リブの幅が、それぞれ前記一方の主面の前記ガス流通溝の幅、および前記他方の主面の前記ガス流通溝の幅と比較して大きく、かつ1.4倍以下であることが好ましい。さらに、この溝-MEA-リブ対応の場合、前記各導電性セパレータ板の、前記両ガス流通溝の底面の幅が、それぞれ前記両ガス流通溝の表面の幅と比較して小さく、かつ0.6倍以上であることが好ましい。

さらに、前記導電性セパレータ板のうち、前記電池スタックの両端部に配した導電性セパレータ板の機械的強度を、他の導電性セパレータ板の機械的強度よりも高くすることが好ましい。この場合、前記両端部に配した導電性セパレータ板の厚みを、他の導電性セパレータ板の厚みより大きくするか、または両端部に配した導電性セパレータ板に、カーボン材料または金属材料を構成要素とする補強部材を付加することが、機械的強度を簡便に高めるという観点から好ましい。

本発明の高分子電解質型燃料電池においては、導電性セパレータ板の厚さと比較した場合の導電性セパレータ板内の最肉薄部の比較厚さを、従来の導電性セパレータ板の場合の同比較厚さよりも厚くすることにより、従来問題となっていた最薄肉部での亀裂や破損を抑制させるとともに、最薄肉部を製造しやすくする。その結果、燃料電池の機械的強度を維持あるいはさらに高めつつ、低コストで小型化を可能にするものである。

図面の簡単な説明

図1は本発明の実施の形態1の燃料電池の主要積層構成を示す概略断面図であり、部分拡大図を含む。

図2Aは本発明の実施の形態1の燃料電池に用いた導電性セパレータ板のカソード側主面の平面図である。

図 2 B は同導電性セパレータ板のアノード側主面の平面図である。

図 3 は従来の導電性セパレータ板 2 枚で M E A を挟んでなる積層構成の一部を示す概略断面図である。

図 4 は本発明の実施の形態 1 の燃料電池に用いた導電性セパレータ板 2 枚で M E A を挟んでなる積層構成の一部を示す概略断面図である。

図 5 は本発明の実施の形態 1 の燃料電池に用いることができる他の形態の導電性セパレータ板 2 枚を用いた積層構成の一部を示す概略断面図である。

図 6 は本発明の実施の形態 1 および 2 の燃料電池に用いることができる電池スタック両端部用の導電性セパレータ板の電池スタック側一主面の平面図である。

図 7 は本発明の実施の形態 2 の燃料電池に用いた導電性セパレータ板 2 枚で M E A を挟んでなる積層構成の一部を示す概略断面図である。

図 8 は本発明の実施の形態 2 の燃料電池に用いることができる他の形態の導電性セパレータ板 2 枚を用いた積層構成の一部を示す概略断面図である。

図 9 は、実施例 2 で作製された 6 個の燃料電池のリブ幅／溝幅の比と平均電圧の関係を示すグラフである。

図 1 0 は、実施例 4 およびその比較例の燃料電池の耐久試験における平均セル電圧の経時変化を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の特徴は、上記のように各導電性セパレータ板の表裏両主面のうち、一方の主面のガス流通溝が、他方の主面のガス流通溝間のリブに対応するように配されていることである。これにより、従来の導電性セパレータ板の厚さが、従来の導電性セパレータ板の厚さと同じであって

も、導電性セパレータ板の中の最肉薄部を極端に薄くすることなく、ガス流通溝の必要な深さを確保することができる。その結果、最肉薄部の亀裂や破損によるガスリークを抑制することができる。

さらに、最肉薄部をある程度の厚さにすることができるため、上述の圧縮成形や射出成形などの際の、セパレータ板用の原材料の薄肉部分への流れ込みの悪化を防ぐことができる。すなわち、本発明によれば、導電性セパレータ板の最肉薄部の必要な厚さを確保しつつ、導電性セパレータ板の厚さを薄くすることができ、小型でかつ製造しやすい燃料電池を提供することができる。

このような導電性セパレータ板を複数用意し、隣り合う導電性セパレータ板の間にMEAを挟んで電池スタックを作る場合、MEAのアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じMEAのカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝とが対応する位置、すなわち溝－MEA－溝対応になるようにすれば、MEAを挟んでリブ同士をも対応させることができるので、電池スタックに加わる締結圧力に対して対抗しやすい。また、両ガスの反応効率も高く維持できる。

このような電池スタック構成を実現するためには、隣り合う導電性セパレータ板用として、2種類の形状の導電性セパレータ板を作り、それを複数用意して、順次積層すれば良い。さらに、電池スタックの製造のしやすさ、あるいは低コスト化の観点からは、電池スタックの両端部用や冷却部用を除き、実質的にすべての導電性セパレータ板用として、1種類だけの形状の導電性セパレータ板を複数用意して、隣り合う導電性セパレータ板を、交互に、導電性セパレータ板の主面上で180度回転させて配置していくことにより、溝－MEA－溝対応を実現するのが、より好ましい方法である。そのためには、各導電性セパレータ板の表裏両主面の両ガス流通溝のパターンを適切に設計する必要がある。そのよ

うな設計の一例を後述の実施の形態 1 に示す。また、このような溝－M E A－溝対応の構成において、各導電性セパレータ板の、両ガス流通溝の底面の幅が、それぞれ両ガス流通溝の表面の幅より小さいことが好ましい。それは溝壁すなわちリブ壁がセパレータ板の内部へ向かって狭くなる構造であることにより、圧縮成形あるいは射出成形などによるセパレータ板の製造上、型抜けが良くなるためである。

また、同様に、導電性セパレータ板を複数用意し、隣り合う導電性セパレータ板の間に M E A を挟んで電池スタックを作る場合、M E A のアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じ M E A のカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝間のリブとが対応する位置、すなわち溝－M E A－リブ対応になるようにすれば、実質的にすべての導電性セパレータ板用として、1 種類だけの形状の導電性セパレータ板を複数用意して、隣り合う導電性セパレータ板を、導電性セパレータ板の主面上で同一方向に配置していくことができ、電池スタックの製造のしやすさを高く維持できる。

この溝－M E A－リブ対応の場合、M E A を挟む 2 枚の導電性セパレータ板の、一方のセパレータ板の各リブの両幅端部が、他方のセパレータ板の対応する 2 つのリブの幅端部と一部オーバーラップする関係になるようにすることが好ましい。それは、電池スタックの両端を締結して燃料電池を作る際の締結圧力を、そのリブ群が機械的に伝達することにより、そのリブ群によって締結圧力に対抗することができるためである。このような理由から、各導電性セパレータ板の表裏両主面の一方の主面のガス流通溝間のリブの幅、および他方の主面のリブの幅が、それぞれ、一方の主面のガス流通溝の幅、および他方の主面のガス流通溝の幅より大きいことが好ましい。ただし、このリブの幅／溝の幅の比が 1.4 より大きくなると、同リブによる M E A 部分の押さえつけにより、M E A

への反応ガス拡散が悪化し、得られる電池電圧が低下するため、1.4倍以下であることが好ましい。

また同じく、この溝-MEA-リブ対応の場合、各導電性セパレータ板の、両ガス流通溝の底面の幅が、それぞれ両ガス流通溝の表面の幅より小さいことが好ましい。それは、電池スタックへ締結圧力が加わった場合、導電性セパレータ板の中のクラック発生がより抑制されるためである。ただし、この溝における底面の幅／表面の幅の比が0.6より小さくなると、クラック発生の抑制がそれ以上向上しないとともに、ガス流通溝の断面積が減少し、ガスの圧力損失が増加する、すなわちガスの有効活用が損なわれるようになるため、溝の底面幅／溝の表面幅の比は0.6倍以上であることが好ましい。

なお、上記の記載および以下の実施の形態や実施例では、溝-MEA-溝対応の例と、溝-MEA-リブ対応の例とを、本発明を具現化させるための代表例として記載している。しかしながら、各セパレータ板の中で、表裏両主面の一方の主面上の溝と、他方の主面上のリブとが対応するという本発明の特徴が発揮されておりさえすれば、MEAを挟んで隣り合う導電性セパレータ板の関係は、それらの代表例の場合に限定する必要はない。たとえば、本発明では、MEAの一方の電極側に面した導電性セパレータ板の溝の位置と、同じMEAの他方の電極側に面した導電性セパレータ板の溝側面すなわちリブ側面とが対応するように配しても良い。つまり、溝-MEA-溝・リブ中間のような対応関係でも良い。さらに換言すると、MEAを介して隣り合う2枚の導電性セパレータ板の相向かい合う溝・リブの相対的位置は、必要に応じて、ずらせた位置にしても良い。

前記導電性セパレータ板のうち、電池スタックの両端部に配した導電性セパレータ板の機械的強度を、他の導電性セパレータ板、すなわち電

池スタックの中間部分の導電性セパレータ板の強度よりも高くすることが、電池スタックの強度をさらに高めるという観点から好ましい。これにより次のような問題を解決する。すなわち、電池スタックを締結ロッド等で締結するときに、導電性セパレータ板の面内で均一な圧力分布にならないとき、電池スタックの両端部の導電性セパレータ板では、集中荷重を受けてしまう部分の強度が不足し、その両端部のセパレータ板自体が破損してしまい、ガス等の漏れが発生するという問題である。この場合、両端部の導電性セパレータ板の厚みを、他の導電性セパレータ板の厚みより大きくするか、または両端部の導電性セパレータ板に、カーボン材料または金属材料を構成要素とする補強部材を付加することが、両端部の導電性セパレータ板の機械的強度を高めるための簡便な方法として好ましい。

実施の形態 1

本実施の形態 1 で作製した高分子電解質型燃料電池の主要積層構成を図 1 に示す。図 1 では積層構成の一部中間部分を省略しているが、省略している部分も図示されている部分と同様である。図 1 の中で、番号を付与した構成要素を中心にして以下説明する。番号を付与していない構成要素も、図示が同様のものは、番号を付与したものと同様な構成要素である。また、図 1 は概略図であり、各構成要素の寸法関係は必ずしも正確ではない。これは他の概略図についても同様である。

まず、この燃料電池の主要部分は、複数の導電性セパレータ板と、隣り合う導電性セパレータ板の間に挟まれた M E A (電解質膜-電極接合体) を主構成要素とする電池スタックであり、図 1 では、両端部の導電性セパレータ板 5 a e から 5 b e までの部分である。部分拡大図に番号を付与しているが、1 は水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜

である。この高分子電解質膜 1 の両面に、一対の電極 2 a、2 b が形成されている。この一対の電極は、片方がアノードで他方がカソードである。各電極は、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒層、およびこの触媒層の外面に形成された、通気性と電子導電性を併せ持つガス拡散層で構成される。

後述する方法で供給される燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、その 2 種類のガスが互いに混合したりしないように、電極 2 a、2 b の周囲には、高分子電解質膜 1 を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。図 1 では、これらを代表させてガスケット 3 として図示している。このガスシール材やガスケット 3 は、電極 2 a、2 b および高分子電解質膜 1 と一体化してあらかじめ組み立てられる。このようにして一体的に組み立てられたものが一つの M E A 4 である。M E A 4 の表裏両主面には、これを機械的に固定するとともに、隣り合う M E A を互いに電氣的に直列に接続するための導電性セパレータ板 5 a、5 b が配置されている。導電性セパレータ板 5 a、5 b と M E A 4 とで一つの電池、すなわちセルが構成される。

導電性セパレータ板 5 a、5 b の M E A 4 と接触する主面には、対応する電極 2 a、2 b の電極面に反応ガス、すなわち燃料ガスおよび酸化剤ガス、を供給するとともに、生成ガスや余剰ガスを排出するための複数の並行するガス流通溝 6 a r、6 b f が相向かい合うように形成されている。また、それらの導電性セパレータ板 5 a、5 b の反対側の主面には、それぞれ次に隣り合う M E A への反応ガスを供給・排出するガス流通溝 6 a f、6 b r が形成されている。ここで、並行する、というのは、図 1 における断面部分で紙面に垂直に伸びるという意味であるが、単純に直線的に並行して伸びる場合だけでなく、例えば後述の図 2 のように、いわゆるサーペンタイン状に蛇行しつつ並行して伸びてもよい。

隣り合うガス流通溝 6 a f の間は同ガス流通溝を規定するリブ 7 a f である。同様に、隣り合うガス流通溝 6 a r、6 b f、6 b r の間は、それぞれ、それらのガス流通溝を規定するリブ 7 a r、7 b f、7 b r である。したがって、リブ 7 a f、7 a r、7 b f、7 b r もガス流通溝 6 a f、6 a r、6 b f、6 b r と同様に並行して伸びている。なお、燃料ガスは電極 2 a、2 b のうちのアノードに、また、酸化剤ガスはカソードに供給されるように配置されている。

本発明の特徴は、各導電性セパレータ板の表裏両主面におけるガス流通溝の位置、例えばガス流通溝 6 a f の位置とガス流通溝 6 a r の位置とがお互いには対応せず、それぞれリブ 7 a r、7 a f と対応するようになっていることにある。より詳しくいうと、図 1 の紙面上で、例えば導電性セパレータ板 5 a を見たとき、ガス流通溝 6 a r とリブ 7 a f とが、さらにガス流通溝 6 a f と 7 a r とが、それぞれ上下にアラインしていることにある。なお、図 1 に示されているように、上端部の導電性セパレータ板 5 a e では、ガス流通溝が下側主面にのみ形成され、下端部の導電性セパレータ板 5 b e では、ガス流通溝が上側主面にのみ形成されている。

本実施の形態 1 では、さらに、MEA 4 を挟む導電性セパレータ板 5 a と 5 b の MEA 4 に面する主面上の流通溝 6 a r、6 b f 同士、またリブ 7 a r、7 b f 同士が対応するように配置されていることも特徴である。この特徴により、MEA 4 を挟んでリブ同士が対応するので、それらリブ群で最終的な電池スタックに対する締め付け圧力を受けとめやすい。また、MEA 4 を介した反応ガスの反応も高く維持しやすい。

図 2 を用いて詳述するが、図 1 の電池スタック内のすべての導電性セパレータ板の表裏両主面のガス流通溝を通して、燃料ガスと酸化剤ガスを供給・排出するためのマニホールド孔などが各導電性セパレータ板に

形成されている。また、1～3セル毎に、導電性セパレータ板の背面に冷却媒体用流路を有する冷却部が設けられている。これらのMEAと導電性セパレータ板および必要に応じて冷却部が交互に積層されて図1の電池スタックが構成されている。この電池スタックを集電板8a、8bと絶縁板9a、9bを介して端板10a、10bで挟み、電池スタックに圧力をかけるように両端板を締結ロッド11a、11bおよび締結ボルト12a、12b、12c、12dで締め付けて固定される。このようにして作製されたのが本実施の形態1の燃料電池である。

図2Aは本実施の形態1の燃料電池に用いた導電性セパレータ板、たとえば5a、のカソード側主面の平面図であり、図2Bは同じ導電性セパレータ板のアノード側主面の平面図であり、図2Aの裏面図である。図2Aの6afと7afはそれぞれ酸化剤ガス流通溝とその溝間のリブであり、図2Bの6arと7arはそれぞれ燃料ガス流通溝とその溝間のリブである。また、図2Aと図2Bで共通して、13aは酸化剤ガスを供給するためのマニホールド孔、13bはそれを排出するためのマニホールド孔である。14aは燃料ガスを供給するためのマニホールド孔、14bはそれを排出するためのマニホールド孔である。15aは冷却媒体を供給するためのマニホールド孔、15bはそれを排出するためのマニホールド孔である。ここに示す溝・リブのパターンは、いわゆるサーペンタイン状のものであるが、本発明の特徴を発揮するものであれば、このようなサーペンタイン状のものでなくても良い。

また、ここでは、内部マニホールド方式の冷却部を一例として記載しているが、外部マニホールド方式の冷却部を採用しても、本発明の特徴は発揮させることができる。

図1で説明したように、図2A、2Bにおける導電性セパレータ板の表裏のガス流通溝6afと6arは紙面に垂直に位置関係をみると、大

部分の箇所では1ピッチ分、すなわち一つの流通溝の幅の分だけ、シフトしており、その結果、基本的にカソード側の溝6 a fとアノード側のリブ7 a rが対応した対置にある。このような導電性セパレータ板を隣り合う導電性セパレータ板が、それぞれの主面上にとどまりつつ、交互に180度回転した配置になるように積層されると、図1のように、MEAを挟んで向かい合うガス流通溝同士が対応する。導電性セパレータ板は一枚おきに同じ方向に配されることになる。この180度回転配置を、図2 Aの導電性セパレータ板5 a矩形の平面図に基づき説明すると、この矩形の中心点を通り、紙面に垂直な線を回転軸として、その矩形を180度回転させる配置のことである。つまり、この構成は、1種類の同一形状の導電性セパレータ板を用意するだけで良いという点で好ましい。なお、図1の断面図は、図2 A、図2 Bの導電性セパレータ板を上記のように積層し、X-Yの面で切った断面に相当する。

このような、溝-MEA-溝対応の構成を実現しようとする場合に、図2 A、図2 Bに示したような溝・リブのパターンを設計して、上述のような交互180度回転配置という手法を採用しても良いが、それ以外でも、溝-MEA-溝対応になるような2種類の導電性セパレータ板を用意し、それを順次積層するようにしても良い。

本発明の第一の特徴は、上記のように、各導電性セパレータ板の表裏両主面のうち、一方の主面のガス流通溝が、他方の主面のガス流通溝間のリブに対応するように配されていることである。その点について、図3、図4および図5に基づき説明する。

図3、図4および図5の1、2 a、2 bはそれぞれ高分子電解質膜および一对の電極であり、MEAの主要構成要素である。

図3は、従来の導電性セパレータ板2枚でMEAを挟んだ積層構成の一部を示す概略断面図であり、参考図である。35 aと35 bはそれぞれ

れ従来の導電性セパレータ板であり、各導電性セパレータ板 35 a、35 b において、すべてのリブ 37 a f、37 a r、37 b f、37 b r は上下に対応、すなわちアラインしている。しかし、同様にガス流通溝 36 a f、36 a r 同士、およびガス流通溝 36 b f、36 b r 同士が対応する位置にあり、その結果、最肉薄部である溝底部 38 a、38 b の厚さ t が薄くなっている。この部分が、その薄さのため、上述したように電池スタックへの締結圧力などにより、破損や亀裂を発生しやすく、そのためガスリークを発生させやすかった。また、そのため導電性セパレータ板 35 a、35 b を薄くすることが困難であった。

図 4 は、図 3 と比較しやすくするため、図 1 の本実施の形態 1 の導電性セパレータ 2 枚で MEA を挟んだ積層構成に対応したものの一部を示した概略断面図である。導電性セパレータ板 45 a、45 b において、ガス流通溝 46 a f はリブ 47 a r と対応している。同様に、47 a f と 46 a r、47 b f と 46 b r、46 b f と 47 b r が対応している。このため、図 3 の 38 a や 38 b のような厚さ t のような肉薄部が存在しない。肉薄部が従来のものよりも厚くなっている。したがって、導電性セパレータ板の厚さをさらに薄くできるとともに、さらに製造上も圧縮成形や射出成形で作りやすい。

図 5 は、図 4 の導電性セパレータ板の各ガス流通溝の断面形状を変えて、各溝の表面の幅 W f に比べて各溝の底面の幅 W b を小さくしたものである。導電性セパレータ板 55 a、55 b において、ガス流通溝 56 a f はリブ 57 a r と対応している。同様に、57 a f と 56 a r、57 b f と 56 b r、56 b f と 57 b r が対応している。このため、図 3 の 38 a や 38 b のような厚さ t のような肉薄部が存在しない。肉薄部が、従来のものよりも厚くなっている。さらに、図 5 の構成の場合、

溝底部の幅が小さくなるため、導電性セパレータ板を圧縮成形や射出成形で製造する場合、一層の型抜け向上により、更なる製造のしやすさが実現する。さらに、電池スタックの製造時の締結圧力や燃料電池使用時に燃料電池に加わる圧力により強い構造であり、したがって、導電性セパレータ板の厚さを一層薄くしやすいという特徴もある。

このように、本発明の特徴を有している範囲において、導電性セパレータ板の並行するガス流通溝、リブの形状は任意に設計することができる。図4のように、対応する溝、リブの幅や深さ・高さを実質的に等しくしても良いし、図5のように変えても良い。またそれ以外でもリブの幅を広くして機械的強度を高めることもできる。

本実施の形態1の、導電性セパレータ板を強化するという目的の中で、もう一つの特徴は、電池スタックの両端部の導電性セパレータ板の強化にある。すなわち、上述のように、電池スタックを締結ロッド等で締結するときの不均一な圧力分布の発生に起因する両端部の導電性セパレータ板の破損である。そのため、図1に図示しているように、両端部の導電性セパレータ板4 e a、4 e bの厚さを、他の導電性セパレータ板の厚さよりも大きくしている。この厚さを大きくする方法として導電性セパレータ板を2枚以上重ねても良い。

図6は、電池スタックの両端部に用いる導電性セパレータ板の電池スタック側の一主面の一例の平面図であり、両端部の導電性セパレータ板の上記問題を解決する他の対策の一例を示す。図6は、一端部の導電性セパレータ板、例えば5 aが、その一主面上に図2 Bに示すアノード側ガス流通溝を有している場合の対策を示す。13 a、14 a、15 aはそれぞれ酸化剤ガス、燃料ガス、冷却媒体を供給するためのマニホールド孔であり、13 b、14 b、15 bはそれぞれ酸化剤ガス、燃料ガス、冷却媒体を排出するためのマニホールド孔である。16 a、16 bはカ

ーボン材料あるいは金属材料などを構成要素とする補強部材である。この補強部材 16 a、16 b は、図に示されているように、マニホールド孔 14 a、15 b、13 b、13 a、15 a、14 b の周辺に貼り付けられており、かつそれら 6 つのマニホールドに対応した貫通孔を有している。この構成により、電池性能を維持しつつ、導電性セパレータ板 5 a を亀裂などの損傷を抑制できる。

実施の形態 2

本発明の特徴は、図 4 の 46 a f と 47 a r の関係のように、基本的に、各導電性セパレータ板の表裏両主面のうちの、一方の主面上のガス流通溝と他方の主面上のリブとが位置的に対応することを基本としている。実施の形態 1 では、さらに M E A を挟んで、隣り合う導電性セパレータ板のガス流通溝同士、例えば図 4 では、46 a r と 46 b f とが対応することを基本としている。しかしながら、M E A を挟んで隣り合う導電性セパレータ板の溝・リブ位置の対応関係は、本発明の特徴を有する範囲において変化させることができる。それを本実施の形態 2 として、以下説明する。

図 7 は本発明の実施の形態 2 の燃料電池に用いた導電性セパレータ板 2 枚で M E A を挟んでなる積層構成の一部を示す概略断面図である。一对の導電性セパレータ板 75 a、75 b で M E A を挟んだ構造であり、導電性セパレータ板 75 a は、ガス流通溝 76 a f、76 a r、リブ 77 a f、77 a r を有し、導電性セパレータ板 75 b は、ガス流通溝 76 b f、76 b r、リブ 77 b f、77 b r を有する。図 7 においては、M E A を挟んで、例えば 76 a r と 77 b f が対応している。すなわち、M E A を挟んで、隣り合う導電性セパレータ板の、一方のガス流通溝と他方のリブとが対応するようになっている。この構成においても、

2種類の反応ガスはMEAを介して充分反応する。

この構成は、図5の場合と同様、各導電性セパレータ板の従来のような肉薄部を避けることができるとともに、製造もしやすいという特徴がある。また、1種類だけの同一形状の導電性セパレータ板を複数用意して、すべてを単純に同一方向に積層していくことができ、製造がしやすいことも特徴である。なお、図7では各溝の幅 W_g よりも各リブの幅 W_r の方を大きくしている。 W_g と W_r は同じでも良いが、 W_r が W_g より大きい方が好ましい。それは、MEAを挟む2枚の導電性セパレータ板の、リブの両端部を位置的にオーバーラップさせることができ、そのオーバーラップ部分を通して、電池スタックを締結する際の締結圧力をリブ群に伝達させることができ、締結圧力に対抗しやすいためである。ただし、 W_r が W_g の1.4倍よりも大きくなると、MEAへの反応ガス拡散が抑制されてしまうので、1.4倍以下である方が好ましい。

図8は本発明の実施の形態2の燃料電池に用いることができる他の形態の導電性セパレータ板2枚を用いた積層構成の一部を示す概略断面図である。一对の導電性セパレータ板85a、85bでMEAを挟んだ構造であり、導電性セパレータ板85aは、ガス流通溝86af、86ar、リブ87af、87arを有し、導電性セパレータ板85bは、ガス流通溝86bf、86br、リブ87bf、87brを有する。図8においては、MEAを挟んで、例えば86arと87bfが対応している。すなわち、図7の場合と同様に、MEAを挟んで、隣り合う導電性セパレータ板の、一方のガス流通溝と他方のリブとが対応するようになっている。この構成においても、2種類の反応ガスはMEAを介して充分反応する。また、耐リーク性や強度を維持しつつ、圧力損失の小さい導電性セパレータ板を構成することが可能となる。

この構成も、図7の場合と同様に、1種類だけの同一形状の導電性セ

パレータ板を複数用意して、すべてを単純に同一方向に積層していくことができ、製造がしやすいという特徴を有する。なお、図 8 でも、各溝の幅 W_f よりも各リブの幅 W_r の方を大きくしている。 W_f と W_r は同じでも良いが、 W_r が W_f より大きい方が、図 7 に基づいて上述した、 W_g と W_r との関係と同様な理由で好ましい。すなわち、MEA を挟む 2 枚の導電性セパレータ板の、リブの両端部を位置的にオーバーラップさせることができるためである。また、 W_g と W_r との関係と同様な理由で、 W_r が W_f の 1.4 倍以下である方が好ましい。

また、ガス流通溝の底面の幅 W_b が、ガス流通溝の表面の幅 W_f よりも小さいことが好ましい。それは、電池スタックへ締結圧力が加わった場合、導電性セパレータ板の中のクラック発生がより抑制されるためである。ただし、 W_b が W_f の 0.6 倍より小さくなると、クラック発生の抑制がそれ以上向上しないとともに、ガス流通溝の断面積が減少し、ガスの圧力損失が増加する、すなわちガスの有効活用が損なわれるようになるため 0.6 倍以上であることが好ましい。

なお、本実施の形態 2 においては、上記の通りの導電性セパレータ板の溝・リブの関係以外の電池スタックの構成、および燃料電池の構成は、図 1 を用いて実施形態 1 で記載したものと同じである。たとえば、図 6 で示した電池スタック端部の導電性セパレータ板の補強方法をそのまま用いることができる。したがって、それらの実施の形態 1 で記載した部分に対応した記載は省略する。

実施例 1

実施形態 1 に記載し、図 1 に示す高分子電解質型燃料電池を以下の方法で作製した。

まず、30 nm の平均一次粒子径を持つ導電性カーボン粒子であるケ

ツチェンブラック EC (オランダ国、AKZO Chemie 社製) を用いて、平均粒径約 30 Å の白金粒子を 50 重量% 担持させたものを、カソード側の触媒とした。また、前記と同じツチェンブラック EC に、平均粒径約 30 Å の白金粒子とルテニウム粒子とを、それぞれ 25 % 担持させたものを、アノード側の触媒とした。これらの触媒粉末をイソプロパノールに分散させた。一方、パーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコールに分散させた。各々の触媒分散液をパーフルオロカーボンスルホン酸の分散液と混合し、ペースト状にした。これらの各ペーストを、スクリーン印刷法を用いて、厚み 250 μm のカーボン不織布の一方の面に塗工して、それぞれカソード触媒層とアノード触媒層を形成した。形成後の反応電極中に含まれる触媒金属の量は 0.5 mg/cm^2 、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は 1.2 mg/cm^2 となるようにした。

これらのアノード側およびカソード側電極は、電極より一回り大きい面積を有するプロトン伝導性高分子電解質膜の中心部の両面に、印刷した触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスにより接合した。ここでは、プロトン伝導性高分子電解質として、パーフルオロカーボンスルホン酸を薄膜化したもの (米国 デュポン社製: ナフィオン 112) を用いた。さらに、電極の外周には、電解質膜を挟んで両側に、導電性セパレータ板と同一の形状に打ち抜いて作られたガスケットをホットプレスによって接合し、MEA を作製した。ここで、導電性セパレータ板は、等方性黒鉛材を機械加工して作ったものであり、ガスケットは、ブチルゴムのシートから作られたものである。

この MEA を、図 1 の MEA 4 として用い、図 1 と図 2 で示す、導電性セパレータ板 5 a、5 b、5 a e、5 b e、ならびに集電板 8 a、8 b、絶縁板 9 a、9 b、端板 10 a、10 b、締結ロッド 11 a、

1 1 b、締結ボルト 1 2 a、1 2 b、1 2 c、1 2 d を用いて本実施例 1 の燃料電池を作製した。

比較のため、導電性セパレータ板 5 a、5 b を、図 3 に示す構成を有する従来例の導電性セパレータ板 3 5 a、3 5 b に替え、その他は本実施例 1 と同じ構成の燃料電池を作製した。

これら 2 つの燃料電池に荷重を加え、その荷重を変化させた。そのとき導電性セパレータ板にクラックが発生し始めた最小荷重をクラック発生荷重として、表 1 に示す。

表 1

導電性セパレータ板のタイプ	クラック発生荷重
従来例	3.5 t
実施例 1	5 t

表 1 からわかるように、本実施例 1 の導電性セパレータ板の耐クラック強度が大幅に向上していることがわかる。

実施例 2

本実施例 2 では、実施例 1 と同じ方法で、ただし導電性セパレータ板の形状だけを変えて燃料電池を作製した。本実施例 2 では、図 7 に示す断面構造の導電性セパレータ板を用いた。

この際、6 つの異なったリブ幅の導電性セパレータ板を用意した。まず、ある一つのリブ幅 W_{r1} のものを用いて燃料電池を作製した。次に、リブ幅 W_{r2} のものを用いて燃料電池を作製した。以下同じように、リブ幅 $W_{r3} - W_{r6}$ のものをそれぞれ用いて、合計で 6 種類の燃料電池

を作製した。

これらの燃料電池を運転させ、電池電圧を測定した結果を図 9 に示す。なお、この運転のためには次のように条件設定した。すなわち、燃料電池を 85℃ に保持し、一方の電極側に 83℃ の露点となるように加湿・加温した水素ガスを、他方の電極側に 78℃ の露点となるように加湿・加温した空気を供給するとともに、燃料電池の燃料利用率 80%、酸素利用率 40%、電流密度 0.3 A/cm² とした。

図 9 において、横軸はリブの幅 W_r と溝の幅 W_g との比であり、値が大きくなるほどリブ幅が広くなることを示している。図 9 からわかるように、リブ幅が広くなるにつれて電池電圧、すなわち電池性能が低下する傾向がある。これは、リブに押さえられた MEA 部分への反応ガスの拡散が低下するためであると考えられる。とくに、 W_r 対 W_g の比が 1.4 をこえたところから顕著な落ち込みを示すことがわかる。したがって、 W_r 対 W_g の比は 1.4 倍以下に設定することが望ましいことがわかる。

実施例 3

本実施例 3 では、実施例 1 と同じ方法で、ただし導電性セパレータ板の形状だけを変えて燃料電池を作製した。本実施例 3 では、図 8 に示す断面構造の導電性セパレータ板を用いた。

この際、4 つの異なった溝底面幅／溝表面幅の比 (W_b/W_f) の導電性セパレータ板を用意した。まず、ある一つの幅比 W_{b1}/W_{f1} のものを用いて燃料電池を作製した。次に、幅比 W_{b2}/W_{f2} のものを用いて燃料電池を作製した。以下同じように、幅比 W_{b3}/W_{f3} および W_{b4}/W_{f4} のものをそれぞれ用いて、合計で 4 種類の燃料電池を作製した。

これら 4 種類の燃料電池に締結荷重を加え、その荷重を変化させた。

そのとき導電性セパレータ板にクラックが発生し始めた最小荷重をクラック発生荷重として、表 2 に示す。

表 2

溝底面の幅／溝表面の幅	クラック発生荷量
1	5 t
0.8	5.2 t
0.6	5.5 t
0.5	5.5 t

表 2 からわかるように、溝底面幅／溝表面幅の比が 0.6 より小さくなる範囲では、クラック発生荷重は飽和している。すなわち溝底面幅／溝表面幅の比は、0.6 より小さくしても、ガス流通溝の断面積が減少し、圧力損失が増加するだけで、強度的な効果は得られないことがわかる。したがって、溝底面の幅／溝表面の比は 0.6 以上であることが望ましい。

実施例 4

本実施例 4 では、実施例 1 と基本的には同じ方法で、ただし以下の点で部分的に構成を異ならせて燃料電池を作製した。

すなわち、MEA 1 を 2 セル毎に、冷却媒体を流す冷却部を設けた。各冷却部は、2 枚の導電性セパレータ板を組み合わせた複合セパレータ板により構成した。すなわち、一方の面に空気を流通させる溝を設け、他方の面に冷却水を流通させる溝を設けたカソード側セパレータ板を、まず 1 枚作った。さらに、一方の面に燃料ガスを流通させる溝を設け、

他方の面に冷却水を流通させる溝を設けたアノード側セパレータ板を1枚作った。これらの2枚のセパレータ板を、それらの冷却媒体用溝を有する面同士が接するように、シール材を介して貼り合わせることで、冷却部を構成した。

そしてMEAを50セル分積層し、電池スタックの両端部に位置する導電性セパレータ板5ae、5beの厚さを5mmとして、集電板8a、8bと絶縁板9a、9bを介し、ステンレス製の端板10a、10bと締結ロッド11a、11bおよび締結ボルト等で20kgf/cm²の圧力で締結して本実施例4の燃料電池を作製した。

比較のため、このように作製した本実施例4の燃料電池の両端部の導電性セパレータ板の厚さを、その他の中間部の導電性セパレータ板の厚さと同じ3mm厚のものに替えて比較例としての燃料電池を作製した。

締結後の各燃料電池を再び分解し、両端部の導電性セパレータ板を観察したところ、比較例の燃料電池では僅かな亀裂が発生していたが、ガス漏れを引き起こすほどの重大な亀裂ではなかった。この亀裂はマニホールド周辺に集中荷重を受けやすくなっていたためである。一方、本実施例4の燃料電池では、亀裂は見受けられなかった。

このようにして作製した本実施例4と比較例の燃料電池2種類を、85℃に保持し、一方の電極側に83℃の露点となるように加湿・加温した水素ガスを、他方の電極側に78℃の露点となるように加湿・加温した空気を供給した。これらの燃料電池を燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度0.3A/cm²の条件下で耐久試験を行った。この試験結果を図10に示す。

図10からわかるように、試験開始から1000時間を経過した頃から、比較例の燃料電池の平均セル電圧、すなわち電池性能が低下し始め

る。この２種類の燃料電池について耐久試験が終了した後、締結圧力を取り除き、両端にあった導電性セパレータ板の状態を観察した。その結果、比較例では、マニホールド孔の周辺でガスあるいは冷却媒体がリークするほどの亀裂に成長しているのが観察された。この成長の原因は、初期の締結時に生じた亀裂が熱などのひずみによって、経時的に進行してしまったためである。これに対して、本実施例４の燃料電池では、両端部の導電性セパレータ板の厚さを大きくして強度を高めたことにより、亀裂などの損傷は全くなく、燃料電池の耐久性と安全性向上が確認できた。

本実施例４では、両端部の導電性セパレータ板の厚さを３mmから５mmに厚くすることを試みたが、別の方法として、導電性セパレータ板を複数枚重ねて強度を高めることも可能である。そこで、両端部の導電性セパレータ板の厚さと枚数を変化させて、上記と同様な亀裂の発生の有無を調べた。ただし、電池スタックの中間部の導電性セパレータ板の厚さは３mmとした。その結果を、表３にまとめる。

表 3

両端部の導電性セパレータ板		効果（亀裂の有無）
セパレータ板厚さ	3mm	有
	4mm	無
	5mm	無
	6mm	無
セパレータ板枚数	1枚	有
	2枚	無
	3枚	無

この表 3 から明らかなように、導電性セパレータ板を厚くしたり、複数枚数重ねたりすることによって、亀裂抑制効果が得られる。

実施例 5

本実施例 5 では、図 6 に一例を示すように、両端部の導電性セパレータ板の酸化剤ガス用マニホールド孔 13 a、13 b、燃料電池用マニホールド孔 14 a、14 b、および冷却媒体用マニホールド孔 15 a、15 b の周辺にステンレス鋼を材料とした補強材 16 a、16 b をシール材によって貼り付け、それ以外の燃料電池構成、および燃料電池の特性評価条件については、すべて実施例 4 と同一とした。

その結果、2000 時間の耐久試験において、電池性能の低下は見受けられず、燃料電池分解後に両端部の導電性セパレータ板を観察しても、亀裂などの損傷を受けている様子はなく、燃料電池の耐久性の改善と安全性の向上が確認できた。ここで、補強部材 16 a、16 b の材料としてステンレス鋼を使用した。補強することができる材料であれば種類は問わない。本実施例では、ステンレス鋼の他に、アルミニウム、ガラスファイバー、カーボンファイバー、PPS 樹脂、フェノール樹脂などの材料を使用しても燃料電池の耐久性の改善と安全性の向上が確認できた。

本実施例では、各マニホールド孔の周辺に補強部材を貼り付けることを試みたが、導電性の補強材をセパレータ板の全面に貼り付けることも可能である。

実施例 6

本実施例 6 では、両端部の導電性セパレータ板の材料として、厚さ 3 mm のステンレス鋼を使用した。導電性セパレータ板の形状は、実施例

1 で、等方性黒鉛材を機械加工して作った形状と同じように機械加工して作った。それ以外の燃料電池構成、および燃料電池の特性評価条件については、すべて実施例 4 と同一とした。ここでは、両端部の導電性セパレータ板の材料としてステンレス鋼を使用した。導電性のある高強度の材料であれば種類は問わない。

この結果、2000 時間の耐久試験において、電池性能の低下は見受けられず、燃料電池分解後に両端部の導電性セパレータ板を観察しても、亀裂などの損傷を受けている様子はなく、燃料電池の耐久性の改善と安全性の向上が確認できた。

産業上の利用の可能性

以上から明らかなように、本発明によれば、高分子電解質型燃料電池の導電性セパレータ板の機械的強度の問題を簡便に解決することができ、燃料電池の品質向上、小型化および低コスト化を実現できる。

請 求 の 範 囲

1. 複数の導電性セパレータ板および前記導電性セパレータ板の間に挿入された電解質膜－電極接合体を含む電池スタックを具備し、前記電解質膜－電極接合体が水素イオン伝導性高分子電解質膜、並びに前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソードを具備し、前記各導電性セパレータ板が、一方の主面に前記アノードに燃料ガスを供給・排出する複数の並行するガス流通溝を有し、他方の主面に前記カソードに酸化剤ガスを供給・排出する複数の並行するガス流通溝を有する高分子電解質型燃料電池であって、前記導電性セパレータ板の両ガス流通溝は、一方の主面のガス流通溝が他方の主面のガス流通溝間のリブに対応するように配されていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

2. 前記電解質膜－電極接合体のアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じ電解質膜－電極接合体のカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝とが対応する位置にある請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。

3. 実質的にすべての前記複数の導電性セパレータ板が同一形状を有し、隣り合う導電性セパレータ板が、交互に、前記各導電性セパレータ板の主面上で180度回転して配されている請求の範囲第2項記載の高分子電解質型燃料電池。

4. 前記各導電性セパレータ板の、前記両ガス流通溝の底面の幅が、それぞれ前記両ガス流通溝の表面の幅より小さい請求の範囲第2項記載の高分子電解質型燃料電池。

5. 前記電解質膜－電極接合体のアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じ電解質膜－電極接合体のカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝とを有する。

給・排出するガス流通溝間のリブとが対応する位置にある請求の範囲第 1 項記載の高分子電解質型燃料電池。

6. 実質的にすべての前記複数の導電性セパレータ板が同一形状を有し、隣り合う導電性セパレータ板が、前記各導電性セパレータ板の主面上で同一方向に配されている請求の範囲第 5 項記載の高分子電解質型燃料電池。

7. 前記各導電性セパレータ板の、前記一方の主面の前記ガス流通溝間のリブの幅、および前記他方の主面の前記リブの幅が、それぞれ前記一方の主面の前記ガス流通溝の幅、および前記他方の主面の前記ガス流通溝の幅より大きく、かつ 1.4 倍以下である請求の範囲第 5 項記載の高分子電解質型燃料電池。

8. 前記各導電性セパレータ板の、前記両ガス流通溝の底面の幅が、それぞれ前記両ガス流通溝の表面の幅より小さく、かつ 0.6 倍以上である請求の範囲第 7 項記載の高分子電解質型燃料電池。

9. 前記複数の導電性セパレータ板のうち、前記電池スタックの両端部に配した導電性セパレータ板の機械的強度を、他の導電性セパレータ板の機械的強度よりも高くした請求の範囲第 1 項記載の高分子電解質型燃料電池。

10. 前記複数の導電性セパレータ板のうち、前記両端部に配した導電性セパレータ板の厚みを、他の導電性セパレータ板の厚みより大きくした請求の範囲第 9 項記載の高分子電解質型燃料電池。

11. 前記両端部に配した前記導電性セパレータ板に、カーボン材料または金属材料を構成要素とする補強部材を付加した請求の範囲第 9 項記載の高分子電解質型燃料電池。

補正書の請求の範囲

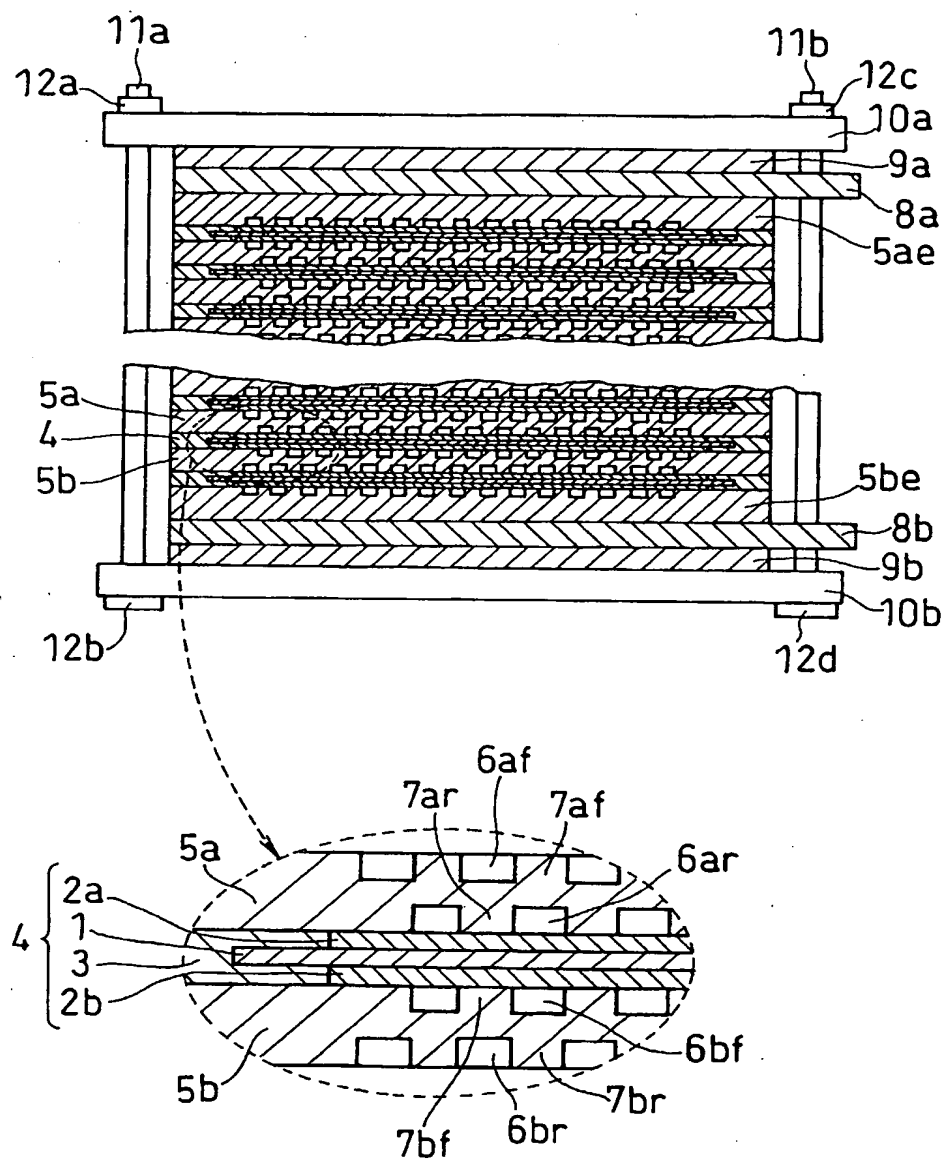
[2002年8月26日 (26. 08. 02) 国際事務局受理：出願当初の請求の範囲
1は補正された；他の請求の範囲は変更なし。(1頁)]

1. (補正後) 複数の導電性セパレータ板および前記導電性セパレータ板の間に挿入された電解質膜－電極接合体を含む電池スタックを具備し、前記電解質膜－電極接合体が水素イオン伝導性高分子電解質膜、並びに前記水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソードを具備し、前記各導電性セパレータ板が、一方の主面に前記アノードに燃料ガスを供給・排出する複数の並行するガス流通溝を有し、他方の主面に前記カソードに酸化剤ガスを供給・排出する複数の並行するガス流通溝を有する高分子電解質型燃料電池であって、前記導電性セパレータ板の両ガス流通溝は、一方の主面のガス流通溝が他方の主面のガス流通溝間のリブに対応するように配されており、前記リブの表面から前記一方の主面の前記ガス流通溝の底面までの距離で定められるリブ厚と、前記一方の主面の前記ガス流通溝の深さとの合計長さが前記導電性セパレータ板のセパレータ板厚であり、前記リブの前記リブ厚は前記リブに隣り合う前記他方の主面のガス流通溝の深さよりも大きいことを特徴とする高分子電解質型燃料電池。
2. 前記電解質膜－電極接合体のアノードに燃料ガスを供給・排出するガス流通溝と、同じ電解質膜－電極接合体のカソードに酸化剤ガスを供給・排出するガス流通溝とが対応する位置にある請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。
3. 実質的にすべての前記複数の導電性セパレータ板が同一形状を有し、隣り合う導電性セパレータ板が、交互に、前記各導電性セパレータ板の主面上で180度回転して配されている請求の範囲第2項記載の高分子電解質型燃料電池。
4. 前記各導電性セパレータ板の、前記両ガス流通溝の底面の幅が、そ

P C T 1 9 条 (1) の規定に基づく説明書

請求の範囲第 1 項を補正することにより、導電性セパレータ板の形態、およびガス流通溝の深さとガス流通溝間のリブの厚さとの関係を明確にした。

FIG. 1



2/7

FIG. 2A

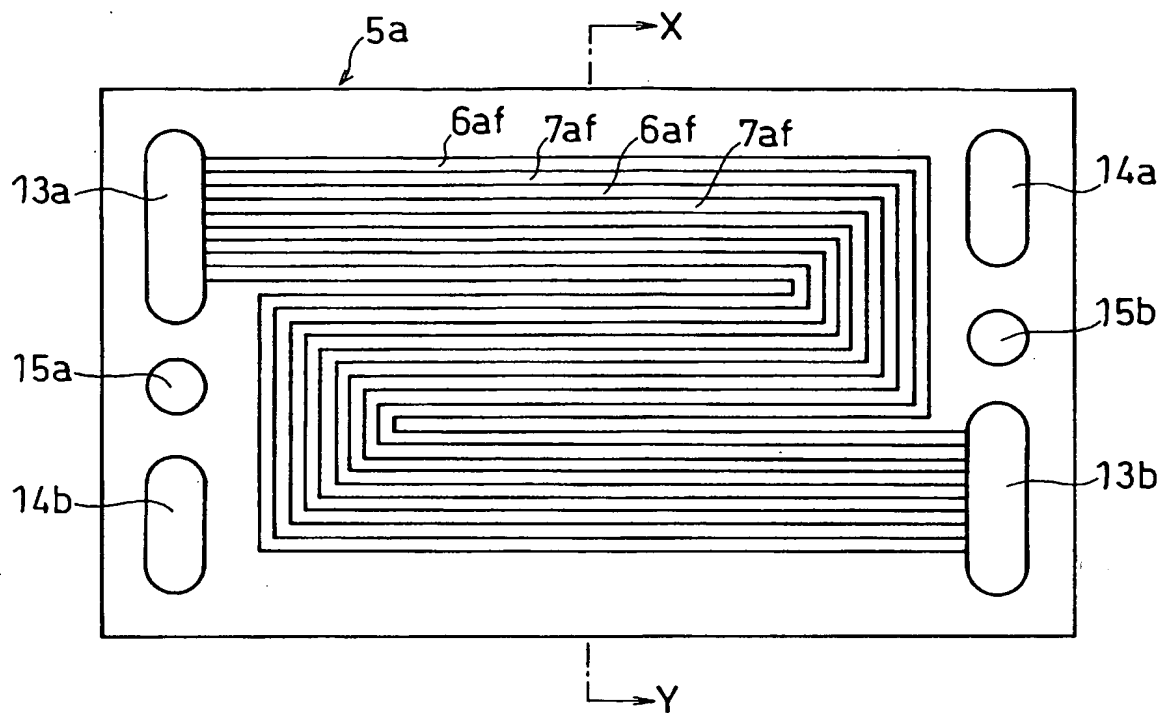
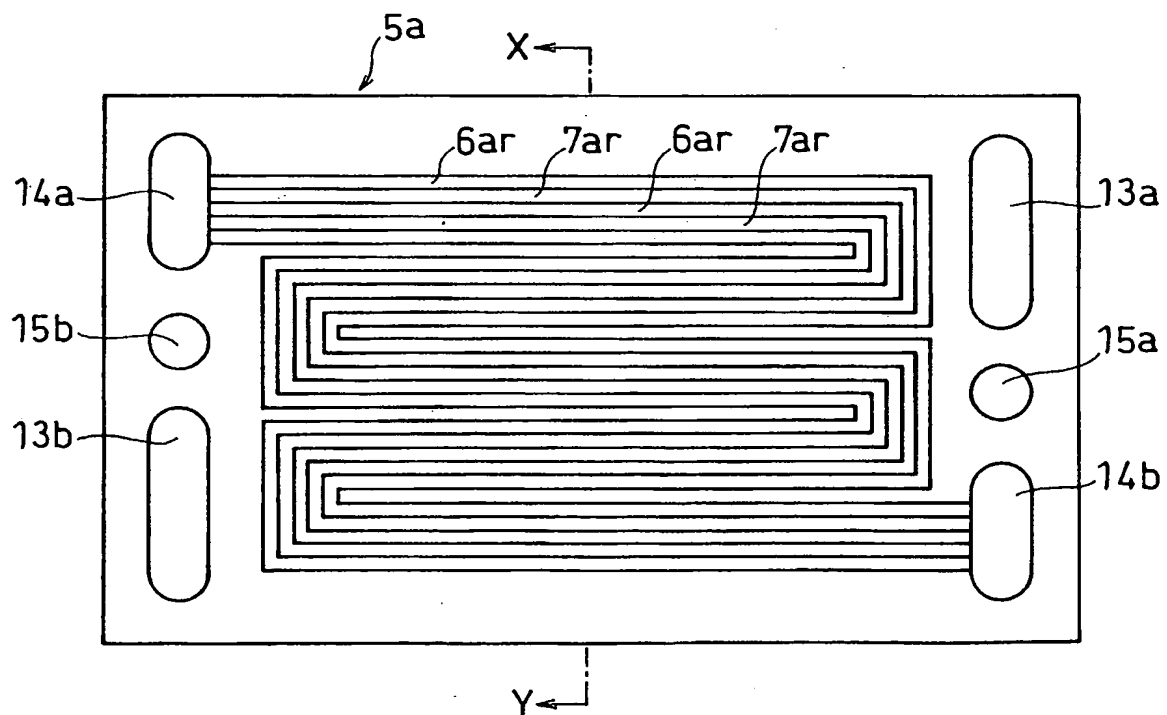


FIG. 2B



3/7

FIG. 3

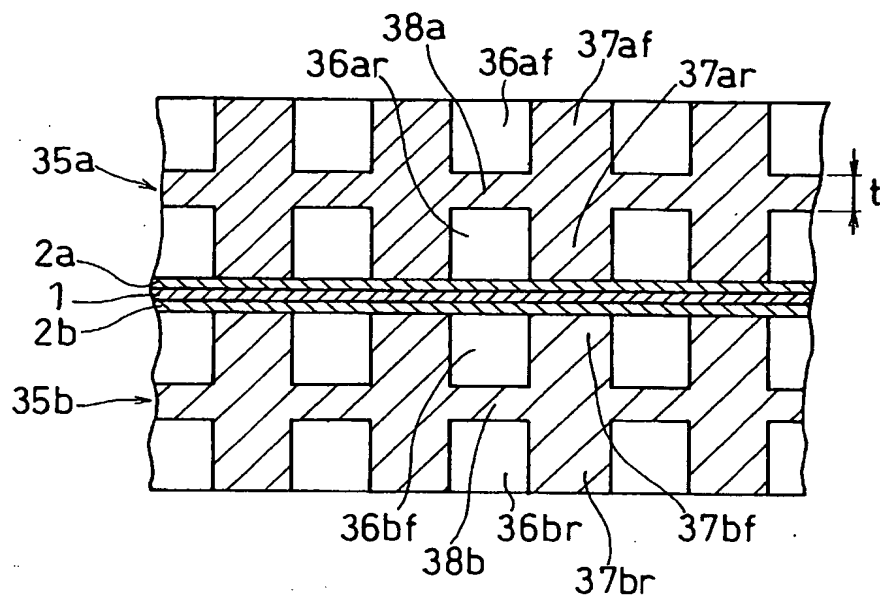


FIG. 4

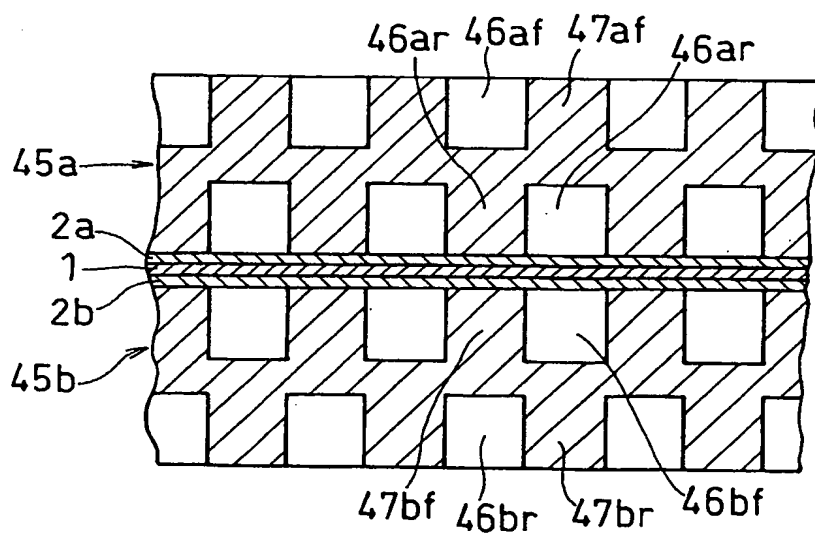


FIG. 5

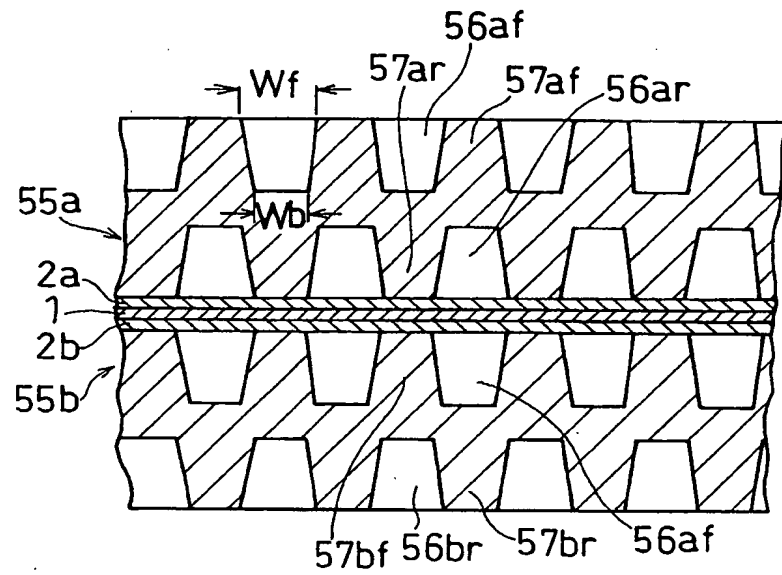


FIG. 6

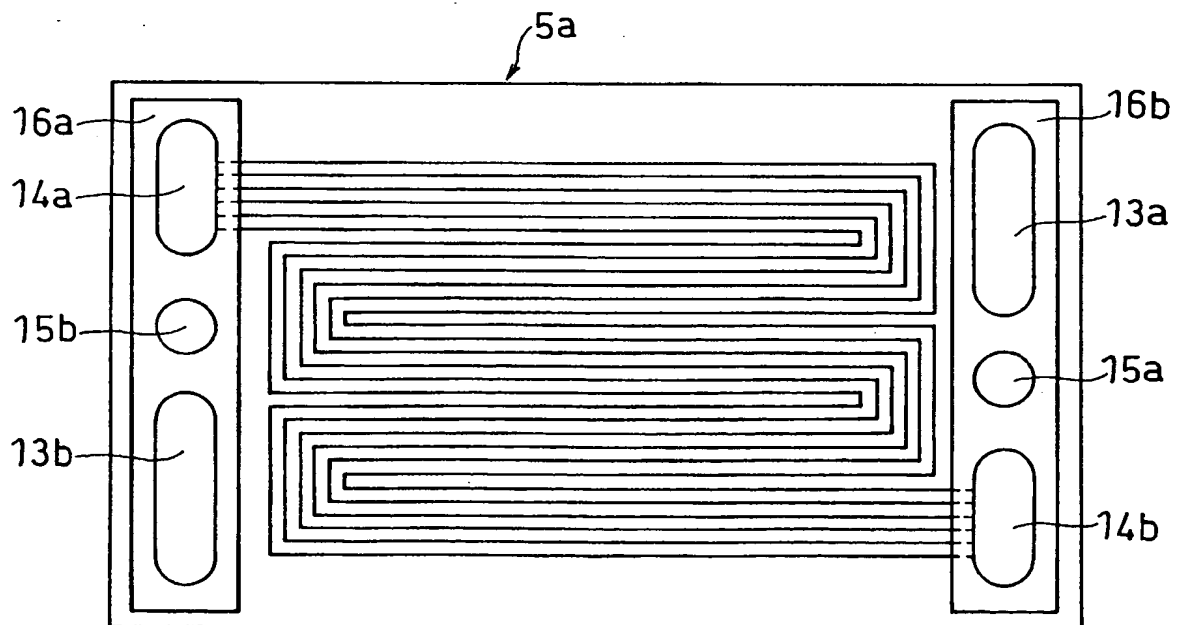


FIG. 7

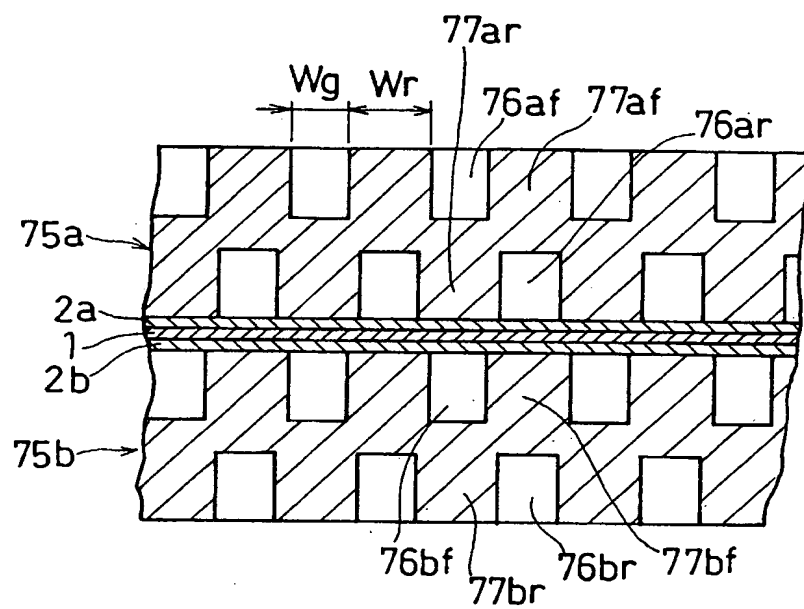
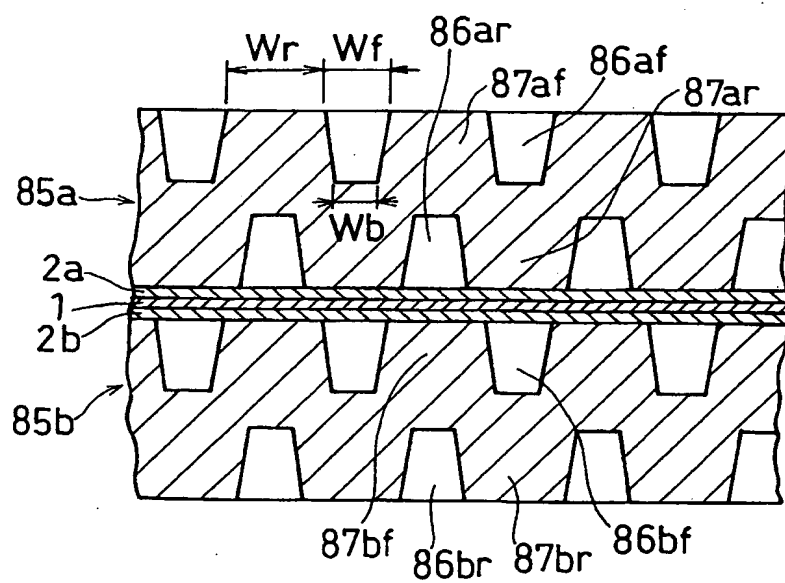
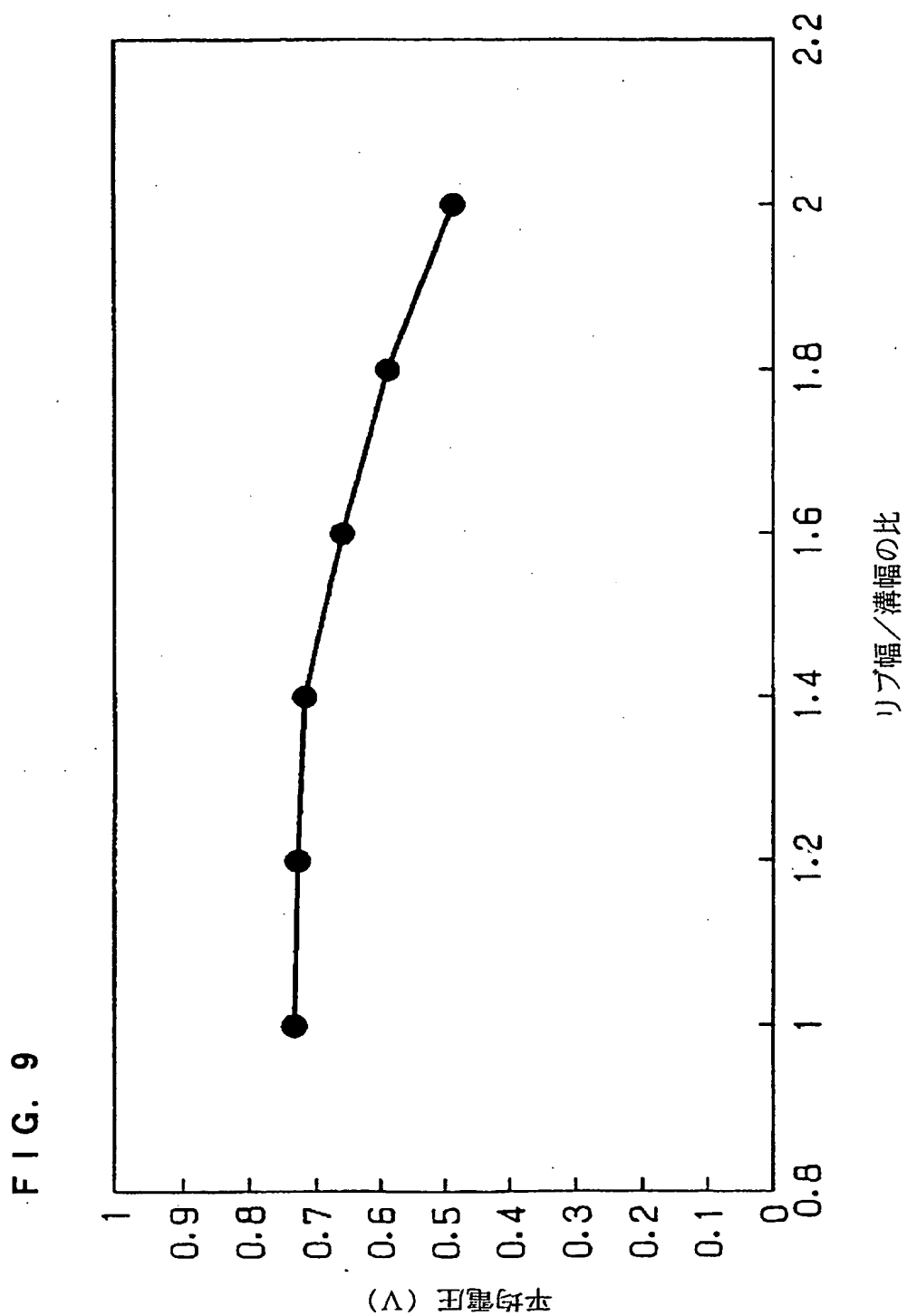
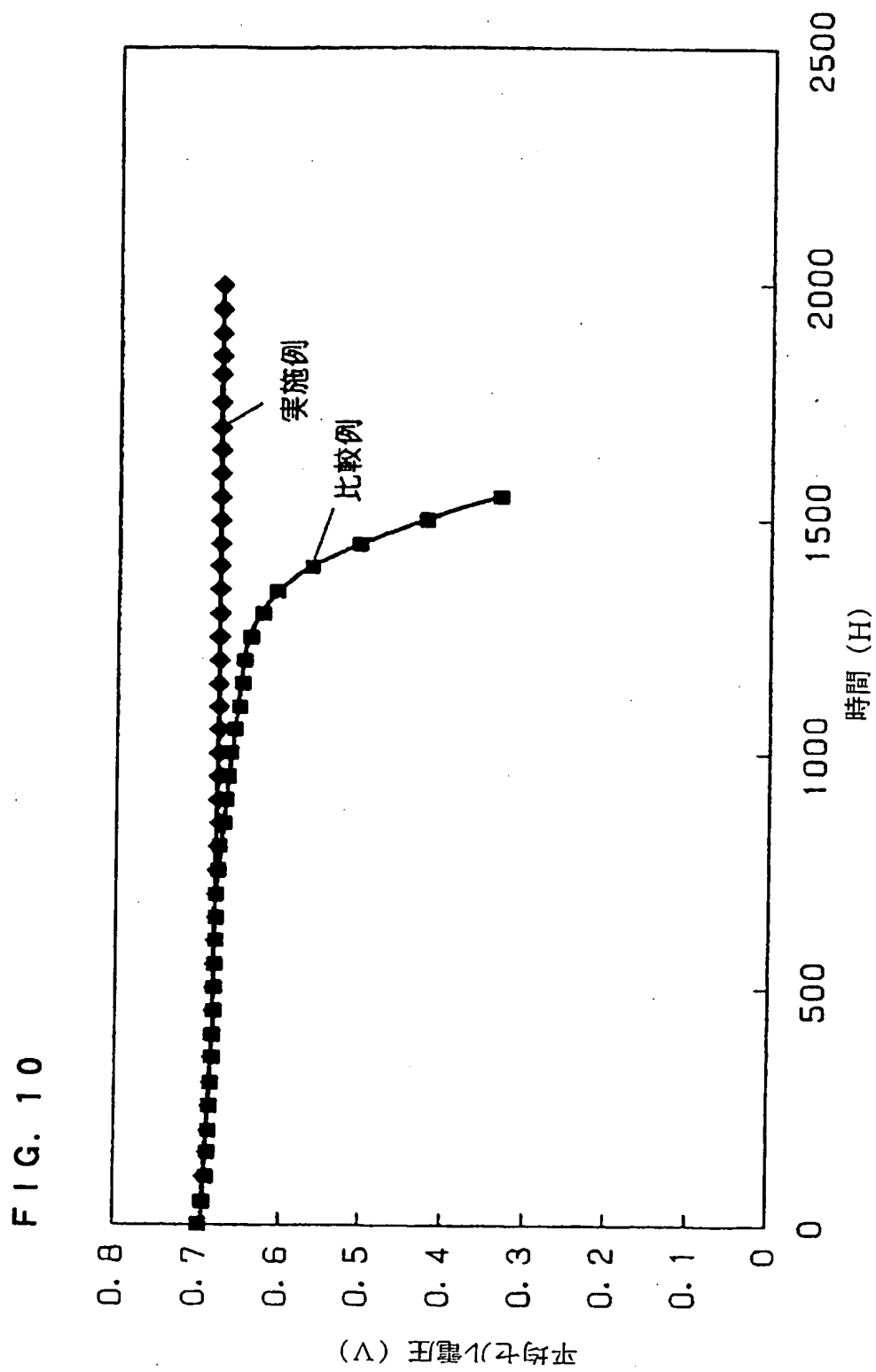


FIG. 8



6/7





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02869

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ H01M8/02, H01M8/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ H01M8/02, H01M8/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 11-354142 A (Toshiba Corp.), 24 December, 1999 (24.12.99), Claims; Par. Nos. [0116] to [0141]; Figs. 1 to 2 (Family: none)	1, 5, 6 7-10 11
X Y A	EP 951086 A2 (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 20 October, 1999 (20.10.99), Par. Nos. [0178] to [0182]; Fig. 16 & JP 2000-133291 A	1-4 9, 10 11
X Y A	JP 2000-182640 A (Riken Corp.), 30 June, 2000 (30.06.00), Par. Nos. [0013] to [0019]; Fig. 2 (Family: none)	1-3 4, 9, 10 11

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
---	--

Date of the actual completion of the international search
18 June, 2002 (18.06.02)

Date of mailing of the international search report
02 July, 2002 (02.07.02)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02869

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 11-354138 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 24 December, 1999 (24.12.99), Claims; Par. No. [0023]; Fig. 1 (Family: none)	4, 8
Y	JP 10-255823 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 25 September, 1998 (25.09.98), Par. Nos. [0028] to [0030]; Figs. 1 to 3 (Family: none)	7, 8
Y	JP 11-162479 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 18 June, 1999 (18.06.99), Par. No. [0033]; Figs. 1 to 2 (Family: none)	7, 8
Y A	JP 2000-21434 A (Honda Motor Co., Ltd.), 21 January, 2000 (21.01.00), Par. Nos. [0016] to [0022]; Fig. 3 (Family: none)	9, 10 11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02869

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

In order that a group of inventions described in claims satisfy the requirement of unity of invention, there must exist a special technical feature so linking the group of inventions as to form a single general inventive concept.

As described in the extra sheets, the claims of this International Application define eight groups inventions: invention 1, invention 2, invention 3, invention 4, invention 5, invention 6, inventions 7-8, and inventions 9-11.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/02869

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

In order that a group of inventions described in claims satisfy the requirement of unity of invention, there must exist a special technical feature so linking the group of inventions as to form a single general inventive concept. The group of inventions of claims 1-11 are linked only in the subject matter of claim 1.

This subject matter is described in prior-art documents such as JP 11-354142 A (Toshiba Co., Ltd.) 1999. 12. 24, JP 2000-133291 A (Matsushita Electric Machine Industry Co., Ltd.) 2000. 05. 12, and JP 2000-182640 A (Riken Corporation) 2000. 06. 30 and therefore cannot be a special technical feature. Thus, there exists no special technical feature so linking as to form a general inventive concept among the group of the invention of claims 1-11.

Therefore, it is clear that the group of inventions of claims 1-11 do not satisfy the requirement of unity of invention.

The number of groups of inventions, i.e., the number of inventions so linked as to form a general inventive concept, defined in claims of this International Application will be examined.

Out of the claims of this International Application, only claim 1 does not refer to another claim. Claims 2, 5, 9 refer to claim 1. Claims 3, 4 refer to claim 2, claims 6, 7 refer to claim 5, claims 10, 11 refer to claim 9, and claim 8 refers to claim 7. As described above, the subject matter described in claim 1 itself cannot be a special technical feature so linking the group of inventions as to form a single general inventive concept. The subject matter of claim 2 referring to claim 1 is described in prior-art documents such as JP 2000-133291 A (Matsushita Electric Machine Industry Co., Ltd.) 2000. 05. 12., and JP 2000-182640 A (Riken Corporation) 2000. 06. 30. and therefore cannot be a special technical feature, and therefore cannot be a special technical feature. The subject matter of claim 5 referring to claim 1 is described in prior-art documents such as JP 11-354142 A (Toshiba Co., Ltd.) 1999. 12. 24. and therefore cannot be a special technical feature. It cannot be denied that the subject matter of claim 9 referring to claim 1 and the subject matter of claim 7 referring to claim 1 and claim 5 are so linked as to form a single general inventive concept. There exists no subject matter which so links a plurality of inventions the other claims as to form a single general inventive concept.

The claims of this International Application define eight inventions divided into divisions: 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7-8, 9-11.

Consequently, the claims of this International Application define eight groups inventions: the invention 1, the invention 2, the invention 3, the invention 4, the invention 5, the invention 6, the inventions 7-8, and the inventions 9-11.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO2/02869

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/24

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2002年
日本国登録実用新案公報 1994-2002年
日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	JP 11-354142 A(株式会社東芝)1999.12.24, 特許請求の範囲、 【0116】～【0141】及び【図1】～【図2】(ファミリーなし)	1, 5, 6 7～10 11
X Y A	EP 951086 A2(Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.)1999.1 0.20, 【0178】～【0182】及びFIG.16 & JP 2000-133291 A	1～4 9, 10 11
X Y	JP 2000-182640 A(株式会社リケン)2000.06.30, 【0013】～【001 9】及び【図2】(ファミリーなし)	1～3 4, 9, 10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 18.06.02

国際調査報告の発送日 02.07.02

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁 (ISA/JJP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
小川 進



4X 8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A		11
Y	JP 11-354138 A(日立化成工業株式会社)1999.12.24, 特許請求の範囲、【0023】及び【図1】(ファミリーなし)	4, 8
Y	JP 10-255823 A(旭硝子株式会社)1998.09.25, 【0028】～【0030】及び【図1】～【図3】(ファミリーなし)	7, 8
Y	JP 11-162479 A(旭硝子株式会社)1999.06.18, 【0033】及び【図1】～【図2】(ファミリーなし)	7, 8
Y A	JP 2000-21434 A(本田技研工業株式会社)2000.01.21, 【0016】～【0022】及び【図3】(ファミリーなし)	9, 10 11

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査することを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、(特別ページ)に記載したように、この国際出願の請求の範囲には、1と2と3と4と5と6と7～8と9～11とに区分される8個の発明が記載されていると認めた。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、この国際出願の請求の範囲1～11に記載されている一群の発明は、請求の範囲1に記載されている事項自体でのみ連関していると認める。

しかしながら、この事項は、先行技術文献、例えば、JP 11-354142 A(株式会社東芝)1999.12.24、JP 2000-133291 A(松下電器産業株式会社)2000.05.12、及び、JP 2000-182640 A(株式会社リケン)2000.06.30等、に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。そうすると、請求の範囲1～11に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存しないこととなる。

よって、請求の範囲1～11に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たしていないことは明らかである。

次に、この国際出願の請求の範囲に記載されている、一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数、すなわち、発明の数につき検討する。

この国際出願の請求の範囲においては、他の請求の範囲の記載を引用することなく記載されているのは、請求の範囲1だけである。そして、請求の範囲2、5、9はその請求の範囲1の記載を引用して記載されており、さらに、請求の範囲3、4は請求の範囲2の記載を、請求の範囲6、7は請求の範囲5の記載を、請求の範囲10、11は請求の範囲9の記載を、それぞれ、引用して記載されており、さらに、請求の範囲8は請求の範囲7の記載を引用して記載されている。しかしながら、前記したように、請求の範囲1に記載されている事項自体では、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴とはなり得ない。また、請求の範囲1の記載を引用して記載されている、請求の範囲2に記載されている事項自体も、先行技術文献、例えば、JP 2000-133291 A(松下電器産業株式会社)2000.05.12、及び、JP 2000-182640 A(株式会社リケン)2000.06.30等、に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ないし、また、請求の範囲1の記載を引用して記載されている、請求の範囲5に記載されている事項自体も、先行技術文献、例えば、JP 11-354142 A(株式会社東芝)1999.12.24等、に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ない。ただ、請求の範囲1の記載を引用して記載されている、請求の範囲9に記載されている事項自体、及び、請求の範囲1の記載を引用して記載された、請求の範囲5の記載を更に引用して記載されている、請求の範囲7に記載されている事項自体によって、単一の一般的発明概念を形成するように連関していることについては否定し得ない。また、他に請求の範囲に記載されている複数の発明を、単一の一般的発明概念を形成するように、連関させている事項は見出し得ない。

そうすると、この国際出願の請求の範囲には、1と2と3と4と5と6と7～8と9～11とに区分される8個の発明が記載されていると認める。